

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 04-328294

(43)Date of publication of application : 17.11.1992

(51)Int.Cl.

H05B 33/14  
H01L 29/28  
// C09K 11/00  
C09K 11/06

(21)Application number : 03-097652

(71)Applicant : PIONEER ELECTRON CORP  
PIONEER VIDEO CORP

(22)Date of filing : 26.04.1991

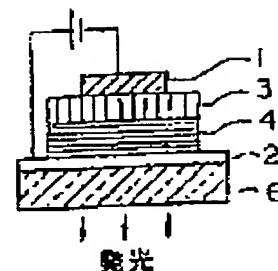
(72)Inventor : AMAMIYA KIMIO  
MANABE MASAMICHI  
TANAKA YUKIO  
YONEMOTO YOSHINOBU

## (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

## (57)Abstract:

**PURPOSE:** To realize light emission stabilized for a long time and with high luminance by a method wherein an electroluminescence layer is provided with a film thickness which produces a secondary maximum value of film thickness luminance attenuation characteristic and has a film thickness within the range in which the amplitude of the layer generates such luminance as exceeds the convergent luminance value of the layer.

**CONSTITUTION:** Organic electroluminescence(EL) element are made up by laminating and filming an EL layer 3 and a hole transport layer 4 as a thin film between a pair of a metal cathode 1 and a transparent anode 2. The range of the film thickness of this EL layer is a range where the secondary maximum value amplitude of the second high luminance of the film thickness luminance attenuation curve of the luminance/current characteristic for a film thickness corresponding to EL layer material exceeds a convergent luminance value, and especially, the EL layer is of a film thickness corresponding to the neighborhood of a secondary maximum value, which indicates a second high luminance in the film thickness luminance attenuation curve so that an organic EL element with high reliability and high luminance can be obtained.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 特 許 公 報 (B 2)

(11)特許番号

特許第3065704号

(P3065704)

(45)発行日 平成12年7月17日(2000.7.17)

(24)登録日 平成12年5月12日(2000.5.12)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

H 0 5 B 33/14

H 0 5 B 33/14

A

H 0 1 L 51/00

C 0 9 K 11/00

F

// C 0 9 K 11/00

11/06

6 0 2

11/06

6 0 2

H 0 1 L 29/28

請求項の数3(全 5 頁)

(21)出願番号

特願平3-97652

(22)出願日

平成3年4月26日(1991.4.26)

(65)公開番号

特開平4-328294

(43)公開日

平成4年11月17日(1992.11.17)

審査請求日

平成10年3月27日(1998.3.27)

(73)特許権者 000005016

バイオニア株式会社

東京都目黒区目黒1丁目4番1号

(73)特許権者 000111889

バイオニアビデオ株式会社

山梨県中巨摩郡田富町西花輪2680番地

(72)発明者

雨宮 公男

山梨県甲府市大里町465番地バイオニア

ビデオ株式会社 半導体工場内

(72)発明者

真鍋 昌道

山梨県甲府市大里町465番地バイオニア

ビデオ株式会社 半導体工場内

(74)代理人

100079119

弁理士 藤村 元彦

審査官 高木 彰

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

1

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】 有機化合物からなり互いに積層されたエレクトロルミネッセンス層及び正孔輸送層が陰極及び陽極間に配された有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記エレクトロルミネッセンス層は、膜厚輝度減衰特性の2次極大値を生ずる膜厚を含みかつその振幅がその収束輝度値を越える輝度を生ずる範囲内の膜厚を有していることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 前記エレクトロルミネッセンス層は、前記膜厚輝度減衰特性の2次極大値を生ずる膜厚のみを有していることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 前記正孔輸送層はトリフェニルジアミン誘導体からなり、さらに前記エレクトロルミネッセンス

2

層はアルミキノリノール錯体からなり、前記収束輝度値を越える輝度を生ずる範囲が2000Å±300Åであることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【技術分野】本発明は、電流の注入によって発光する物質のエレクトロルミネッセンス(以下、ELという)を利用して、かかる物質を薄膜に形成したEL層を備えたEL素子に関し、特に発光物質が有機化合物である有機EL素子に関する。

【0002】

【背景技術】この種の有機EL素子として、図1に示すように、金属陰極1と透明陽極2との間に、それぞれ有機化合物からなり互いに積層された発光体薄膜からなる

EL層3及び正孔輸送層4が配された2層構造のものや、図2に示すように、金属陰極1と透明陽極2との間に互いに積層された有機化合物からなる電子輸送層5、EL層3及び正孔輸送層4が配された3層構造のものが知られている。ここで、正孔輸送層4は陽極から正孔を注入させ易くする機能と電子をブロックする機能とを有し、電子輸送層5は陰極から電子を注入させ易くする機能を有している。

【0003】これら有機EL素子において、透明陽極2の外側にはガラス基板6が配されており、金属陰極1から注入された電子と透明陽極2からEL層3へ注入された正孔との再結合によって励起子が生じ、EL層における正孔輸送層との境界面近傍にて励起子が放射失活する過程で光を放ち、この光が透明陽極2及びガラス基板6を介して外部に放出される（特開昭59-194393号公報及び特開昭63-295695号公報参照）。

【0004】しかしながら、上述した構成の従来の有機EL素子は、EL層内でエネルギー消費し低電圧で発光するけれども、EL層が500Å以下と薄い膜厚の場合、一般に寿命が短い。例えば、図1に示す2層構造で膜厚300ÅのEL層を有する有機EL素子を初期輝度400cd/m<sup>2</sup>となるように連続発光させると、該素子は100時間以下で輝度が半減し劣化する。

【0005】一方、EL層の膜厚を大きくすると定電圧駆動であっても膜厚の増大とともにその輝度は減少する。EL素子の発光原理から考えると輝度は印加電流に比例すると考えられるが、実際は異なる。

【0006】

【発明の目的】本発明は、長期間安定して高輝度発光する有機EL素子を提供することを目的とする。

【0007】

【発明の構成】本発明による有機EL素子は、有機化合物からなり互いに積層されたEL層及び正孔輸送層が陰極及び陽極間に配された有機EL素子であって、膜厚輝度減衰特性の2次極大値を生ずる膜厚を含みかつその振幅がその収束輝度値を越える輝度を生ずる範囲内の膜厚を有していることを特徴とする。

【0008】

【実施例】以下に本発明による実施例を図を参照しつつ説明する。本実施例の有機EL素子は、図1に示すものと同様な、一対の金属陰極1と透明陽極2との間にEL層3及び正孔輸送層4を薄膜として積層、成膜した2層構造のものである。例えば陰極1には、アルミニウム、マグネシウム、インジウム、銀又は各々の合金等の仕事関数が小さな金属からなり厚さが約100～5000Å程度のものが用い得る。また、例えば陽極2には、インジウムスズ酸化物（以下、ITOという）等の仕事関数の大きな導電性材料からなり厚さが1000～3000Å程度で、又は金で厚さが800～1500Å程度のものが用い得る。

【0009】本発明による有機EL素子のEL層3を形

成する有機蛍光化合物の具体的な例としては、アルミキノリノール錯体すなわちAlオキシキレート（以下、Alq<sub>3</sub>という）、テトラフェニルプタジエン誘導体等が用いられ得る。正孔輸送層4には、トリフェニルジアミン誘導体であるN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス（3メチルフェニル）-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン（以下、TPDという）が好ましく用いられ、更にCTM（Carrier Transporting Materials）として知られる化合物を単独、もしくは混合物として用い得る。

【0010】発明者は、2層構造の有機EL素子のEL層膜厚、発光スペクトル及び輝度並びに視角の研究の結果、輝度とEL層膜厚の間には輝度の膜厚依存性が、輝度の視角依存性があることを知見した。すなわち、図3に示すように有機EL素子のガラス基板6側表面を目視者が見る角度によって発光スペクトル及び輝度が変化する。目視者にとってEL層内の発光源Pの1点から発した光には、図中の直接基板6へ向かう経路A及び背面の金属電極1で反射し基板6へ向かう経路Bの2つの光が含まれる。この2つの経路の光は以下の数式1に示す光路差L、さらに数式2に示す位相差 $\eta y$ を保持しているので、互いに干渉する。（両数式中、nはEL層3の屈折率を、yは発光源Pから金属電極1までの距離を、 $\theta$ はEL層内における表示表面の法線からそれる視角を、 $\lambda$ は波長をそれぞれ示す。以下、同じ）。

【0011】

【数1】

$$L = 2ny \cos \theta$$

【0012】

【数2】

$$\frac{4\pi ny \cos \theta}{\lambda} = \eta y$$

【0013】よって、干渉効果としてその強度I（y,  $\lambda$ ）は数式3の如く表せる。

【0014】

【数3】

$$I(y, \lambda) = \frac{1}{2} (1 + \cos(\eta y))$$

【0015】EL層中での発光強度f（y）の分布は、図4に示すように正孔輸送層4の境界面においては強く金属電極1に向かうほど減少し、膜厚に関する指数関数分布として数式4の如く表せ、EL層全体としては数式5の如く正規化できる（両数式中、dはEL層3の膜厚を、 $\epsilon$ は発光強度分布パラメータを、kは定数をそれぞれ示す。以下、同じ）。

【0016】

【数4】

$$f(y) = k \exp(y/\epsilon)$$

【0017】

【数5】

$$\int_{-\infty}^{\infty} f(y) dy = 1$$

【0018】発光源自体の発光スペクトルの強度分布 $F(\lambda)$ は発光体特有の波長 $\lambda$ の関数として表せる。よって、目視者によって実際に観察されるEL素子の発光強度 $T(\lambda, \theta, d)$ は数式6のように表せる。

【0019】

【数6】

$$T(\lambda) = F(\lambda) \times \int_{-\infty}^{\infty} f(y) \times I(y, \lambda) dy$$

【0020】ここで、EL素子の発光強度 $T(\lambda, \theta, d)$ を確認するために、膜厚 $(y=d)$ 6000Åとし発光強度分布パラメータ $\epsilon$ を200Åと一定にしたA1q<sub>3</sub>からなるEL層を含む有機EL素子を作成し、視角 $\theta$ を0°から75°まで種々変化させてその発光強度の試験を行った。図5は、発光波長に対する発光強度分布を示す。かかる発光強度分布と上記数式6の発光強度 $T(\lambda, \theta, d)$ とが略一致することが確認された。図から明らかなように、目視者にとっては視角0°から75°までEL素子表示面を見る方向によって色彩が順次異なるように見える。

【0021】さらに、実用に沿うように、波長 $\lambda$ に対して特定値で感応する目視者または光検出器の視感度特性 $E(\lambda)$ を考慮する。例えば視感度特性 $E(\lambda)$ を正規分布とすると、かかる感度特性内におけるEL素子の輝度特性 $L(d)$ は、数式7のように $d$ の関数として表せる( $K$ は定数を示す。)

【0022】

【数7】

$$L(d) = K \int_{-\infty}^{\infty} T(\lambda) \times E(\lambda) d\lambda$$

【0023】図6は、A1q<sub>3</sub>からなるEL層( $\theta=0, n=1.7$ )についてその膜厚を0Åから8000Åにわたって変化させ計算した場合の膜厚に対する輝度/電流特性の膜厚輝度減衰(特性)曲線を示し、この減衰曲線が有機EL素子における輝度の膜厚依存性を示している。かかる有機EL素子の輝度の膜厚依存性を確認するための有機EL素子を作成し試験を行うと、図7に示すような減衰特性の結果が得られる。試験した複数の有機EL素子は膜厚500ÅのTPDの正孔輸送層と膜厚1150Åから7725ÅのA1q<sub>3</sub>のEL層との2層構造を有するものである。図示するように、かかる有機EL素子は、図6と同様に、最小膜厚かつ最大輝度を示しこれを1次極大値として順次次数が増加(膜厚増加)するにつれて周期的に輝度の極大値が現れ、この極大値が減少する膜厚輝度減衰曲線の特性すなわち、輝度の膜厚依存性を示している。なお、図7の膜厚輝度減衰曲線は、これら有機EL素子に膜厚500ÅのTPD正孔輸送層を用いているために特性曲線全体が図6のものに比して図の右方に変移している。

【0024】かかる有機EL素子の内、好適な実施例は、図6から明らかなようにA1q<sub>3</sub>のEL層の厚さを2次極大値Cに対応する2000Å±300Åとした有機EL素子である。この膜厚範囲のEL層とすることによって、輝度を確保しつつ高印加電流に耐えるEL層を得ることができる。すなわち、このEL層の膜厚範囲は、図6に示すEL層材質に応じた膜厚に対する輝度/電流特性の膜厚輝度減衰曲線の2番目に高い輝度の2次極大値振幅がその収束する輝度値(収束輝度値)を超える範囲Dであり、特にEL層を膜厚輝度減衰曲線における2番目に高い輝度を示す2次極大値近傍に対応する膜厚とすることにより高信頼性かつ高輝度の有機EL素子が得られ、好ましい。

【0025】さらに、視角の変化は膜厚が変化することと等しいので、EL層を膜厚輝度減衰曲線における2次極大値近傍に対応する膜厚と設定することにより、視角が多少変化しても輝度の変化が小さい高輝度の有機EL素子が得られる。図8は、上記したTPD正孔輸送層及びA1q<sub>3</sub>EL層の2層構造の有機EL素子の各々について、視角度に対する輝度/電流の相対値を測定した結果を示す。図から明らかなように、1次、2次及び3次極大値に対応する膜厚1150Å、2500Å及び4565Åを有する有機EL素子は、視角の増加に従って輝度が増加する視角による依存性が少ない傾向にあることが分かる。よって、膜厚輝度減衰曲線における各々の振幅の極大値に対応するEL層膜厚であれば、輝度及び発光スペクトルの視角依存性が小さくなり視角による色彩の変化も小さい有機EL素子が得られる。EL層を膜厚輝度減衰曲線における2番目に高い輝度を示す2次極大値近傍に対応する膜厚とする上記実施例も、輝度の視角依存性が小さい。

【0026】ここで、実施例として膜厚輝度減衰曲線における2次極大値近傍に対応する膜厚とする有機EL素子が好ましいのは、1次極大値の膜厚のEL層は上記したように薄いために有機EL素子の寿命が短いものとなってしまい、3次極大値以上のものは輝度/電流が低くなってしまう為である。すなわち、2次極大値の膜厚を有する上記実施例が、有機EL素子の寿命と輝度の均衡がとれた高信頼性かつ高輝度の有機EL素子であるからである。

【0027】さらに、本発明は、上記実施例のA1q<sub>3</sub>のEL層に限らず、EL層材質に応じた図6に示す膜厚に対する輝度/電流特性の膜厚輝度減衰曲線から2次極大値振幅に対応するEL層膜厚値を得ることが出来る。

【0028】

【発明の効果】以上説明したように、本発明による有機EL素子は、EL層が膜厚輝度減衰曲線の2番目に高い輝度の2次極大値の振幅がその収束する輝度値を超える範囲内の膜厚を有しているので、耐久性を向上させつつ低電圧にて効率良く高輝度で発光させることができる。

さらに、本発明によれば、スペクトルの視角依存性が小さいために、視角による色彩の変化も小さい高信頼性かつ高輝度の有機EL素子を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】2層構造の有機EL素子を示す構造図である。

【図2】3層構造の有機EL素子を示す構造図である。

【図3】2層構造の有機EL素子における光の干渉を説明する部分拡大断面図である。

【図4】2層構造の有機EL素子におけるEL層の膜厚発光強度分布を説明するグラフである。

【図5】2層構造の有機EL素子におけるEL層の波長発光強度分布を説明するグラフである。

【図6】2層構造の有機EL素子におけるEL層の単体層の膜厚輝度減衰曲線を説明するグラフである。

10

\*【図7】EL層及び正孔輸送層の2層構造の有機EL素子における実測した膜厚輝度減衰曲線を示すグラフである。

【図8】EL層及び正孔輸送層の2層構造の有機EL素子における実測した視角度輝度特性曲線を示すグラフである。

【符号の説明】

1……金属陰極

2……透明陽極

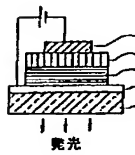
3……EL層

4……正孔輸送層

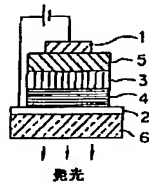
5……電子輸送層

6……ガラス基板

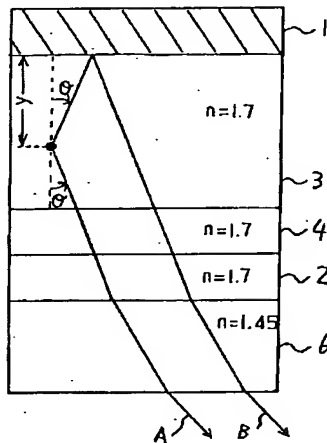
【図1】



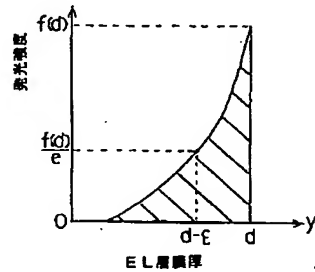
【図2】



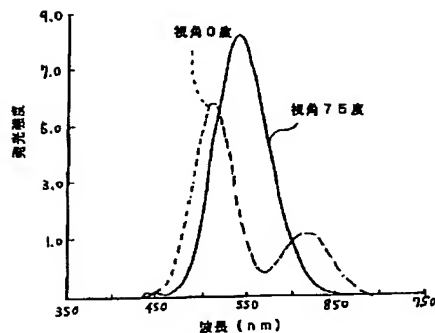
【図3】



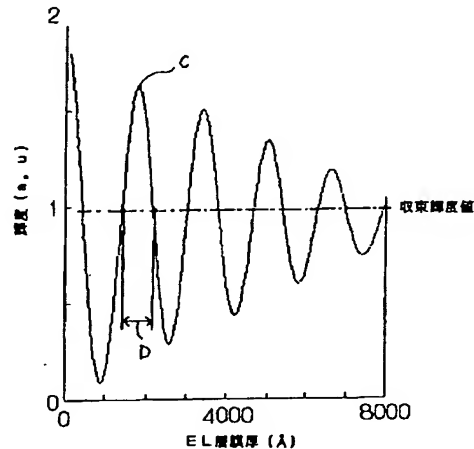
【図4】



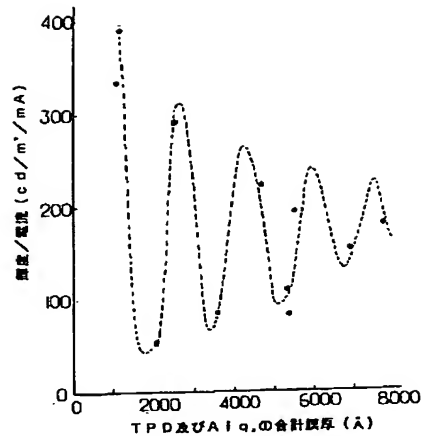
【図5】



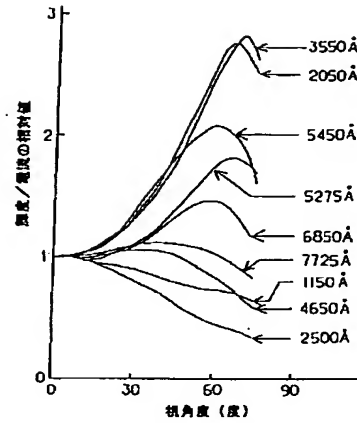
【図6】



【図7】



【図8】



フロントページの続き

(72)発明者 田中 幸男  
山梨県甲府市大里町465番地バイオニア  
ビデオ株式会社 半導体工場内  
(72)発明者 米本 圭伸  
山梨県甲府市大里町465番地バイオニア  
ビデオ株式会社 半導体工場内

(56)参考文献 第51回応用物理学会学術講演会 28a  
-PB-11 (1990)「有機EL素子にお  
ける光子の放出確率の制御」

(58)調査した分野(Int.Cl.<sup>7</sup>, DB名)

H05B 33/14  
H01L 51/00  
C09K 11/00  
C09K 11/06 602